

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-345435

(43)Date of publication of application : 12.12.2000

(51)Int.Cl. D01F 9/15  
D01D 10/00

(21)Application number : 2000-036684 (71)Applicant : NIPPON STEEL CORP  
NIPPON MITSUBISHI OIL CORP  
NIPPON GRAPHITE FIBER KK

(22)Date of filing : 15.02.2000 (72)Inventor : ARAI YUTAKA  
DOKEN KATSUYUKI  
NAKAMURA TSUTOMU

(30)Priority

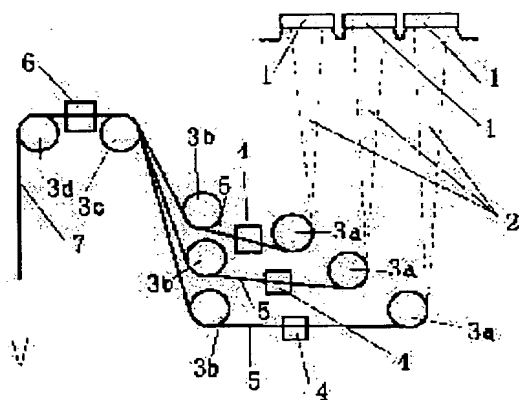
Priority number : 11089062 Priority date : 30.03.1999 Priority country : JP

(54) PITCH FIBER BUNDLE, PITCH-BASED CARBON FIBER BUNDLE AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a pitch fiber bundle for carbon fiber having low fineness and a pitch-based carbon fiber bundle, especially suitable for production of carbon fiber woven fabrics and a carbon fiber prepreg having a low weight per unit area, and provide a method for producing the pitch-based carbon fiber having low fineness at a low cost and in improved productivity in comparison with conventional methods.

SOLUTION: Plural pitch fibers are divided into two or more bundles and interlacing by air flow is applied to the each bundle to provide a first fiber bundle, and plurality of the first fiber bundles are joined and interlacing by air flow is applied to the joined pitch fiber bundle to provide a second fiber bundle and the pitch fiber is taken off from the second fiber bundle. Thereby, since the same productivity as that of a carbon fiber having multi-fineness is kept in each step of spinning, infusibilization, carbonization, and the like, production of a carbon fiber having low fineness is finally made possible, and the carbon fiber having low fineness can industrially and inexpensively be produced in good productivity.



REST AVAILABLE COPY

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or

application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-345435

(P2000-345435A)

(43) 公開日 平成12年12月12日 (2000. 12. 12)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テマコード\* (参考)

D 0 1 F 9/15

D 0 1 F 9/15

4 L 0 3 7

D 0 1 D 10/00

D 0 1 D 10/00

Z 4 L 0 4 5

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2000-36684 (P2000-36684)

(22) 出願日 平成12年2月15日 (2000. 2. 15)

(31) 優先権主張番号 特願平11-89062

(32) 優先日 平成11年3月30日 (1999. 3. 30)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000006655

新日本製鐵株式会社

東京都千代田区大手町2丁目6番3号

(71) 出願人 000004444

日石三菱株式会社

東京都港区西新橋1丁目3番12号

(71) 出願人 595173824

日本グラファイトファイバー株式会社

東京都新宿区西新宿3-5-1

(74) 代理人 100072349

弁理士 八田 幹雄 (外4名)

最終頁に続く

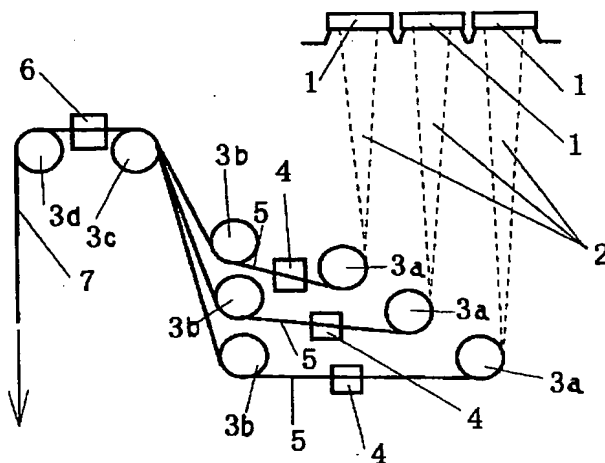
(54) 【発明の名称】 ピッチ繊維束およびピッチ系炭素繊維束ならびにその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 特に炭素繊維織物、低目付け炭素繊維ブリブ  
レグの製造に適する、低繊度炭素繊維用ピッチ繊維束な  
らびに炭素繊維束ならびにその製造方法であり、従来に  
比べ低コストでかつ生産性を改善した低繊度炭素繊維の  
製造方法ならびにピッチ繊維束および炭素繊維束を提供  
する。

【解決手段】 複数本のピッチ繊維を2つ以上の束に分  
割したのち、それぞれの束に空気流による交絡を与え、  
第1の繊維束としたのち、第1の繊維束を複数本あわ  
せ、このあわせたピッチ繊維束に再び空気流による交絡  
を与えて第2の繊維束としてピッチ繊維を引き取ること  
を特徴とするピッチ系炭素繊維の製造方法ならびにピッ  
チ繊維束および炭素繊維束。

【効果】 紡糸、不融化、炭化等の各工程では多繊度炭  
素繊維と同様の生産性を維持し、最終的に低繊度の炭素  
繊維の製造を可能とする事から、低繊度の炭素繊維を工  
業的に生産性が良く安価に製造できる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 100mm以下の交絡度を有する第1のビッチ繊維束が2本以上の束で構成される第2の繊維束であり、該第2の繊維束内の該第1の繊維束間の交絡度が100mm～5000mmであることを特徴とするビッチ繊維束。

【請求項2】 200mm以下の交絡度を有する第1の炭素繊維束が2本以上の束で構成される第2の繊維束であり、該第2の繊維束内の該第1の繊維束間の交絡度が200mm以上であり、かつ第1の繊維束への分割能を有することを特徴とするビッチ系炭素繊維束。

【請求項3】 請求項2に記載の第2の炭素繊維束を分割してなる第1の繊維束であることを特徴とするビッチ系炭素繊維束。

【請求項4】 ビッチ繊維を引き取る方法において、複数本のビッチ繊維を2つ以上の繊維束に分割したのち、それぞれの繊維束に空気流による交絡を与え、第1の繊維束としたのち、該第1の繊維束を複数本あわせ、このあわせたビッチ繊維束に再び空気流による交絡を与えて第2の繊維束としてビッチ繊維を引き取ることを特徴とするビッチ系炭素繊維の製造方法。

【請求項5】 請求項4で得られた第2の繊維束を不融化、炭化した後、第1の繊維束に分割することを特徴とする炭素繊維の製造方法。

【請求項6】 請求項4で得られた第2の繊維束を不融化、炭化した後、第1の繊維束に分割してまたは分割しながら、黒鉛化することを特徴とする炭素繊維の製造方法。

【請求項7】 請求項4で得られた第2の繊維束を不融化、炭化、黒鉛化した後、第1の繊維束に分割することを特徴とする炭素繊維の製造方法。

【請求項8】 請求項4に記載の空気流による交絡方法として、第1の繊維束とする際に、複数本のビッチ繊維を2つ以上の束に分割したそれぞれの繊維束に対して少なくとも2方向から1m/s～50m/sの空気流を与え、また、第2の繊維束とする際に、第1の繊維束を複数本あわせた繊維束に対して少なくとも2方向から10m/s～400m/sの空気流を与えることを特徴とするビッチ系炭素繊維の製造方法。

【請求項9】 請求項5～7のいずれか1項に記載の炭化の際に、第2の繊維束に対して0.29mN/tex～9.8mN/texの張力をかけながら焼成することを特徴とするビッチ系炭素繊維の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、炭素繊維の前駆体の1種であるビッチ繊維束およびビッチ系炭素繊維束ならびにその製造方法に関するものである。特に炭素繊維織物、低目付け炭素繊維ブリブレッグの製造に適する、低

びビッチ系炭素繊維束ならびに低繊度の炭素繊維の製造方法であり、従来に比べ、低コストでかつ生産性を改善した、低繊度の炭素繊維の前駆体の1種であるビッチ繊維束およびビッチ系炭素繊維束ならびに低繊度の炭素繊維の製造方法に関する。本発明で得られたビッチ系炭素繊維は、軽量の炭素繊維織物、炭素繊維ブリブレッグの製造に適しており、スポーツ、レジャー産業、宇宙航空分野等種々の産業分野の使用に好適である。

## 【0002】

【従来の技術】ビッチ系炭素繊維は、その前駆体であるビッチ繊維、不融化繊維、炭化繊維とともに、アクリル繊維を前駆体とするPAN系炭素繊維に比べ脆弱であり取り扱いが非常に難しい繊維である。

【0003】従来、低繊度のビッチ系炭素繊維を得るには、紡糸工程でのフィラメント数を減じる必要があるが、このため、生産性が著しく低下するとともに、脆弱なうえに低繊度の繊維を取り扱う必要性がある。そのため、工業的に低繊度炭素繊維を製造することは生産性が低く、コスト高になる要因を含んでいた。このため、軽量の炭素繊維織物、炭素繊維ブリブレッグが高価となる問題を抱えていた。

【0004】かかる問題に対し一旦製造された炭素繊維束を幾つかの束にさらに分割することで、低繊度の炭素繊維を得る方法も提案されている。しかしながら、一般的にビッチ系炭素繊維は、PAN系炭素繊維よりも高弾性率であるため、繊維の伸びが小さい。そのため、炭素繊維束の分割時に糸切れが多発して所定の繊度に安定して分割することが不可能であった。

【0005】また、特開平1-250417号公報では、PAN系炭素繊維前駆体繊維束を2本以上引き揃え撚りをかけコードとし、このコードを更に合糸して焼成した後それぞれの炭素繊維束コードに分繊する方法が提案されている。しかしながら、この方法で作られた炭素繊維は縫製用縫糸として適するものの、軽量ブリブレッグへの加工へは不適であるという問題があった。同様に特開平9-273032号公報および特開平10-121325号公報には、1本のトウの形態を保ちながら使用するときには複数の小トウに分割可能なPAN系炭素繊維用繊維束が提案されている。しかしながら、ビッチ繊維では不可能な撓縮付与等を行ったり、あるいは小トウの合糸を行うためにワインダーで巻き取る必要があり、ビッチ系炭素繊維への適応は大変困難であった。

【0006】また、特開平1-229820号公報には、フィラメント数が1000未満であるビッチ系炭素繊維が提案されている。しかしながら、この方法では、繊維間に膠着を生じてしまうという問題があった。また、比較的高速に実施できる紡糸の後で、極めて脆いビッチ繊維を合糸するために生産性が著しく損なわれるという問題があった。

## 【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、低織度の炭素繊維を製造する際に、炭素繊維製造コストを左右する、紡糸、不融化、炭化の各工程での生産性を改善し、安価な製造コストである低織度のビッチ系炭素繊維を得るための、炭素繊維前駆体ビッチ繊維束およびビッチ系炭素繊維束ならびにその製造方法を提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明の目的は、(1) 100mm以下の交絡度を有する第1のビッチ繊維束が2本以上の束で構成される第2のビッチ繊維束であり、該第2のビッチ繊維束内の該第1のビッチ繊維束間の交絡度が100mm～5000mmであることを特徴とするビッチ繊維束により達成されるものである。

【0009】また、本発明の他の目的は、(2) 200mm以下の交絡度を有する第1の炭素繊維束が2本以上の束で構成される第2の炭素繊維束であり、該第2の炭素繊維束内の該第1の炭素繊維束間の交絡度が200mm以上であり、かつ第1の炭素繊維束への分割能を有するものであることを特徴とするビッチ系炭素繊維束によっても達成されるものである。

【0010】本発明の他の目的は、(3) 上記(2)に記載の第2の炭素繊維束を分割してなる第1の繊維束であることを特徴とするビッチ系炭素繊維束によっても達成されるものである。

【0011】本発明の他の目的は、(4) ビッチ繊維を引き取る方法において、複数本のビッチ繊維を2つ以上の繊維束に分割したのち、それぞれの繊維束に空気流による交絡を与え、第1の繊維束としたのち、該第1の繊維束を複数本あわせ、このあわせたビッチ繊維束に再び空気流による交絡を与えて第2の繊維束としてビッチ繊維を引き取ることを特徴とするビッチ系炭素繊維の製造方法によっても達成されるものである。

【0012】本発明の他の目的は、(5) 上記(4)で得られた第2の繊維束を不融化、炭化した後、第1の繊維束に分割することを特徴とする炭素繊維の製造方法によっても達成されるものである。

【0013】本発明の他の目的は、(6) 上記(4)で得られた第2の繊維束を不融化、炭化した後、第1の繊維束に分割してまたは分割しながら、黒鉛化することを特徴とする炭素繊維の製造方法によっても達成されるものである。

【0014】本発明の他の目的は、(7) 上記(4)で得られた第2の繊維束を不融化、炭化、黒鉛化した後、第1の繊維束に分割することを特徴とする炭素繊維の製造方法によっても達成されるものである。

【0015】本発明の他の目的は、(8) 上記(4)に記載の空気流による交絡方法として、第1の繊維束とする際に、複数本のビッチ繊維を2つ以上の束に分割したそれぞれの繊維束に対して少なくとも2方向から1m

/s～50m/sの空気流を与え、また、第2の繊維束とする際に、第1の繊維束を複数本あわせた繊維束に対して少なくとも2方向から10m/s～400m/sの空気流を与えることを特徴とするビッチ系炭素繊維の製造方法によっても達成されるものである。

【0016】本発明の他の目的は、(9) 上記(5)～(7)のいずれか1つに記載の炭化の際に、第2の繊維束に対して0.29mN/tex～9.8mN/texの張力をかけながら焼成することを特徴とするビッチ系炭素繊維の製造方法によっても達成されるものである。

【0017】

【発明の実施の形態】本発明の炭素繊維の前駆体の1種であるビッチ繊維束は、100mm以下の交絡度を有する第1のビッチ繊維束が2本以上の束で構成される第2の繊維束であり、該第2の繊維束内の該第1の繊維束間の交絡度が100mm～5000mmであることを特徴とするものである。

【0018】また、本発明のビッチ系炭素繊維束は、200mm以下の交絡度を有する第1の炭素繊維束が2本以上の束で構成される第2の繊維束であり、該第2の繊維束内の該第1の繊維束間の交絡度が200mm以上であり、かつ第1の繊維束への分割能を有するものを特徴とするものである。さらに本発明のビッチ系炭素繊維束は、上記第2の炭素繊維束を分割してなる第1の繊維束であることを特徴とするものであってもよい。

【0019】さらに、本発明のビッチ系炭素繊維の製造方法は、ビッチ繊維を引き取る方法において、複数本のビッチ繊維を2つ以上の束に分割したのち、それぞれの束に空気流による交絡を与え、第1の繊維束としたのち、第1の繊維束を複数本あわせ、このあわせたビッチ繊維束に再び空気流による交絡を与えて第2の繊維束としてビッチ繊維を引き取ることを特徴とするものである。

【0020】ここで、本発明のビッチ系炭素繊維及びその前駆体は、各製造過程によって順次その特性や構造等が変化する。そこで、紡糸工程及びその後の交絡処理により形成される繊維束をビッチ繊維束とする。以下同様に、不融化工程により得られる繊維束を不融化繊維束とする。続いて低温炭化工程により得られる繊維束を低温炭化繊維束ないし1次炭化繊維束とする。さらに炭化(2次炭化)工程により得られる繊維束を炭化繊維束とする。その後、必要に応じてなされる黒鉛化工程により得られる繊維束を黒鉛化繊維束とする。そしてビッチ系炭素繊維束(あるいは単に炭素繊維束、ビッチ系炭素繊維束または炭素繊維とも称している)は、上記炭化繊維束および/または黒鉛化繊維束のいずれかを指すものである。次に、本明細書(請求項を含む)中の文言を解釈する上で、単に繊維束、第1の繊維束、第2の繊維束という場合には、前後の文章等から容易にどの製造過程にお

けるものかが明確にわかるためにその名称を簡略化したものであって、すべてが同一なものでないことはいうまでもない。すなわち、例えば、紡糸工程およびその後の交絡処理により得られる繊維束であれば、ビッチ繊維束、第1のビッチ繊維束、第2のビッチ繊維束とすべきところを、それぞれ繊維束、第1の繊維束、第2の繊維束と略記しているものである。同様に、例えば、炭化工程により得られる繊維束であれば、炭化繊維束、第1の炭化繊維束、第2の炭化繊維束（もしくは上述したように炭素繊維束、第1の炭素繊維束、第2の炭素繊維束など）とすべきところを、それぞれ繊維束、第1の繊維束、第2の繊維束と略記しているものである。

【0021】以下、本発明の内容を図面を用いて詳細に説明する。

【0022】ビッチ繊維の製造は、従来、良く知られる紡糸方法がとられる。図1に示すように、複数のキャピラリーを有する口金（紡糸ノズル）1をひとつ、あるいは複数個配置した紡糸装置から、ビッチ繊維を引き取る際に、所定の繊維本数になるようにビッチ繊維フィラメント2をビッチ繊維引き取りロール3aを介して束ね、2つ以上のビッチ繊維束に分割する。このビッチ繊維束に、必要に応じて集束剤を付与する。その後、繊維交絡装置4の部分でそれぞれの繊維束に空気流による交絡を与え、第1の繊維束（ビッチ繊維束）5とする。この後、必要に応じて第1の繊維束5を単独、あるいは複数併せたものに再度集束剤を付与する。その後、第1の繊維束5をロール3b、3cを介して複数束ねたものを繊維交絡装置6の部分で再び空気流による交絡を与え、ロール3dを第2の繊維束（ビッチ繊維束）7としビッチ繊維を引き取る。

【0023】ここで、紡糸用ビッチの原料は、コールタール、コールタールビッチ等の石炭系ビッチ、石炭液化ビッチ、エチレンタールビッチ、流動接触触媒分解残渣油から得られるデカントオイルビッチ等の石油系ビッチ、あるいはナフタレン等から触媒などを用いて作られる合成ビッチ等、各種のビッチを包含するものである。

【0024】紡糸用ビッチとして使用されるビッチは、前記のビッチを公知の方法で改質したものが用いられる。

【0025】また、紡糸用ビッチは、軟化点が200～400℃、より好ましくは230～350℃のものがよい。

【0026】得られたビッチは紡糸に先だって絶対濾過精度が3μm以下であるフィルター、あるいはこのフィルターと同等あるいはそれ以上の濾過精度が得られる濾過方法によりビッチ中の異物を取り除くことが必要である。ビッチ中に3μm以上の固形異物が存在すると糸切れが頻発することとなる。

【0027】上記紡糸用ビッチを口金（紡糸ノズル）で紡糸する条件としては、例えば、紡糸粘度1～300P

a・s、好ましくは10～200Pa・s、より好ましくは20～100Pa・sを示す温度で、口径0.05～0.5mm、好ましくは0.08～0.3mmのキャピラリーを用い、紡糸速度（引き取り速度）10～2000m/min、好ましくは100～1000m/min、より好ましくは200～600m/minで引き取り延伸するものである。上記紡糸粘度が1Pa・s未満の場合には、低粘度のため曳糸性が劣り好ましくない。紡糸粘度が300Pa・sを超える場合には、紡糸時の張力が過大となり、このため糸切れが生じ好ましくない。キャピラリーの口径が0.05mm未満の場合には、キャピラリー詰まりが生じ易く好ましくない。キャピラリーの口径が0.5mmを超える場合には、繊維径変動が生じ易く好ましくない。上記紡糸速度が10m/min未満の場合には、生産性が著しく低下し好ましくない。紡糸速度が2000m/minを超える場合には、空気抵抗により紡糸張力が過大となり好ましくない。

【0028】このときに用いる紡糸装置は、複数のキャピラリーを有する口金（紡糸ノズル）を単独または複数個ならべたものが利用できる。このときに並べる紡糸ノズルの数は、10個以下が好ましい。これより数が多いと、各ノズル間の調整が煩雑になったり、また、紡糸ノズルの間隔が広がり単一のロールで延伸することが困難となり、糸の揃いのよいマルチフィラメント炭素繊維の製造が困難となる。また、キャピラリーの本数は、1つの紡糸ノズル当たり100～10000本、好ましくは500～5000本、より好ましくは1000～3000本である。こうした紡糸ノズルを有する紡糸装置としては、特に制限されるものではなく従来公知の紡糸装置を適宜利用することができる。例えば、特開平6-146119号公報に記載ないし図示するものなどが挙げられる。

【0029】紡糸によって2つ以上に分割される各ビッチ繊維束のフィラメント数は、通常100～10000本、好ましくは500～5000本、より好ましくは1000～3000本である。フィラメント数100本未満の場合には、繊維束のハンドリング性が悪化し好ましくない。一方、フィラメント数が10000本を超える場合には、本発明の目的である低粘度炭素繊維とは言えず好ましくない。

【0030】ビッチ繊維のフィラメントの繊維径は、ビッチ繊維を不融化、炭化、黒鉛化することにより繊維径の収縮が生じるので、この分を考慮してビッチ繊維のフィラメントの繊維径を決定すればよい。通常、ビッチ繊維のフィラメントの繊維径は、直径5～30μm、好ましくは7～20μm、より好ましくは8～15μmである。ビッチ繊維のフィラメントの繊維径が、直径5μm未満の場合には、紡糸が著しく困難となり好ましくない。一方、直径30μmを超える場合には、繊維のハン

ドリリング性が劣り好ましくない。

【0031】上記第1の繊維束を得るには、繊維束に対し2方向あるいはそれ以上の方向から $1\text{ m/s} \sim 50\text{ m/s}$ 、好ましくは $1.5 \sim 20\text{ m/s}$ 、より好ましくは $2 \sim 10\text{ m/s}$ の空気流を与えればよい。これにより、ビッチ繊維束に軽い交絡を与えることができる。空気流が $1\text{ m/s}$ 未満では交絡が不十分で、後工程での繊維の分割に問題を生じる。また、 $50\text{ m/s}$ 超ではビッチ繊維が毛羽だったり、交絡の程度が大きくなりすぎ、炭素繊維の品位が低下する。具体例としては、図1に示すように第1の繊維束5を得るには、繊維交絡装置4における空気流によりビッチ繊維束に交絡を与えればよい。より詳しくは、図2に示すように筒状の繊維交絡装置本体10の筒内経路を通過する繊維束9に対し、該繊維交絡装置本体10に設けた2以上の空気吹込口を通じて2方向あるいはそれ以上の方向から上記速度で空気流8を与えればよい。ここで、空気吹込口を通じて与えられる空気流の総流量は、通常 $0.01 \sim 20\text{ m}^3/\text{hr}$ 、好ましくは $0.02 \sim 5\text{ m}^3/\text{hr}$ 、より好ましくは $0.05 \sim 1\text{ m}^3/\text{hr}$ である。空気流の総流量が $0.01\text{ m}^3/\text{hr}$ 未満の場合には、交絡が不十分であり好ましくない。一方、空気流の総流量が $20\text{ m}^3/\text{hr}$ を超える場合には、交絡の程度が大きくなりすぎ好ましくない。また、上記空気流の温度は、一般的には室温で良いが、交絡の程度を調整する目的で冷却したり、加温したりすることも適宜可能である。上記空気流の流速および総流量が得られるように、上記空気吹込口の数および口径を決定すればよい。また、空気吹込口は、2方向あるいはそれ以上の方向から空気流が効果的に与えられるように、上記筒状の繊維交絡装置本体10の同一円周上に2個以上設けてもよい（図2参照）し、筒状の繊維交絡装置本体10の軸方向に適当な間隔をあけて2個以上設けても良いし、これらを組み合わせて2個以上設けても良い。空気流は、（1）繊維束9に進行方向に対してほぼ垂直に吹き付けてもよい（図2参照）し、（2）繊維束9に進行方向に対して逆方向に吹き付けても良いし、（3）繊維束9に進行方向に対して順方向に吹き付けても良いなど、繊維束9に進行方向に対してほぼ $0^\circ \sim 180^\circ$ のいずれかの向きに吹き付けられればよく、特に限定されるものではないが、好ましくは $45^\circ \sim 135^\circ$ 、より好ましくは $60^\circ \sim 120^\circ$ である。また、上記筒状の繊維交絡装置本体の内径は、交絡が十分に付与できる大きさがあればよく、 $2 \sim 30\text{ mm}$ あればよい。なお、こうした筒状の繊維交絡装置本体10を用いることなく、繊維束9に対して2方向あるいはそれ以上の方向から空気流が与えられるように、2以上の空気吹出ノズルのみを設けても良いなど、空気流の与え方については、特に限定されるものではない。

【0032】こうして得られた第1のビッチ繊維束の交絡度は $100\text{ mm}$ 以下、好ましくは $10\text{ mm} \sim 100\text{ mm}$

$\text{m}$ 、さらに好ましくは $20\text{ mm} \sim 100\text{ mm}$ である。交絡度が $100\text{ mm}$ を超すと第2の繊維束から第1の繊維束に分割を行う際の分割能が劣ることとなり好ましくない。なお、第1のビッチ繊維束の交絡度の下限は、繊維束の開繊性（広がり程度）の観点から $10\text{ mm}$ とするのが望ましい。

【0033】得られた第1の繊維束を単独あるいは複数併せたものに必要に応じて付与される集束剤は、特に制限されるものではなく、従来公知のものを適宜利用することができる。具体的には、水、シリコン、有機溶媒、あるいはシリコン、有機溶媒の水エマルジョンなどが挙げられる。

【0034】第2の繊維束を得るには、第1の繊維束を複数本あわせた繊維束に対して少なくとも2方向から $10\text{ m/s} \sim 400\text{ m/s}$ 、好ましくは $15 \sim 300\text{ m/s}$ 、より好ましくは $20 \sim 200\text{ m/s}$ の空気流を与えればよい。これにより、ビッチ繊維束全体に軽い交絡を与えることができる。空気流が $10\text{ m/s}$ 未満では第2の繊維束が第1の繊維束に簡単に分繊してしまい、後工程のハンドリングに問題が生じる。また、 $400\text{ m/s}$ 超ではビッチ繊維が毛羽だったり、第1の繊維束への分繊が困難になる。具体例としては、図1に示すように第2の繊維束7を得るには、繊維交絡装置6における所定速度の空気流により第1の繊維束を複数本あわせた繊維束に交絡を与えればよい。より詳しくは、図2に示すように筒状の繊維交絡装置本体10の筒内経路を通過する繊維束9に対し、該繊維交絡装置本体10に設けた2以上の空気吹込口を通じて2方向あるいはそれ以上の方向から上記速度で空気流8を与えればよい。ここで、空気吹込口を通じて与えられる空気流の流量は、通常 $0.1 \sim 200\text{ m}^3/\text{hr}$ 、好ましくは $0.2 \sim 50\text{ m}^3/\text{hr}$ 、より好ましくは $0.4 \sim 30\text{ m}^3/\text{hr}$ である。上記空気流の流量が $0.1\text{ m}^3/\text{hr}$ 未満の場合には、第2の繊維束が第1の繊維束に簡単に分繊してしまい、後工程のハンドリングに問題が生じる。また、上記空気流の流量が $200\text{ m}^3/\text{hr}$ を超える場合には、ビッチ繊維に毛羽立だちが生じることがあるなど好ましくない。また、上記空気流の温度は、一般的には室温で良いが、交絡の程度を調整する目的で冷却したり、加温することも適宜可能である。上記空気流の流速および総流量が得られるように、上記空気吹込口の数および口径を決定すればよい。また、空気吹込口は、2方向あるいはそれ以上の方向から空気流が効果的に与えられるように、上記筒状の繊維交絡装置本体10の同一円周上に2個以上設けてもよい（図2参照）し、筒状の繊維交絡装置本体10の軸方向に適当な間隔をあけて2個以上設けても良いし、これらを組み合わせて2個以上設けても良い。空気流は、（1）繊維束9に進行方向に対してほぼ垂直に吹き付けてもよい（図2参照）し、（2）繊維束9に進行方向に対して逆方向に吹き付けても良いし、（3）繊維

束9に進行方向に対して順方向に吹き付けても良いなど、繊維束9に進行方向に対しては $0^{\circ} \sim 180^{\circ}$ のいずれかの向き吹き付けられればよく、特に限定されるものではないが、好ましくは $45^{\circ} \sim 135^{\circ}$ 、より好ましくは $60^{\circ} \sim 120^{\circ}$ である。また、上記筒状の繊維交絡装置本体の内径は、交絡が十分に付与できる大きさがあればよく、 $5 \sim 1000 \text{ mm}$ あればよい。なお、こうした筒状の繊維交絡装置本体10を用いることなく、繊維束9に対して2方向あるいはそれ以上の方向から空気流が与えられるように、2以上の空気吹出ノズルのみを設けても良いなど、空気流の与え方については、特に限定されるものではない。

【0035】この第2の繊維束を構成する第1の繊維束間の交絡度は、 $100 \text{ mm}$ 以上、好ましくは $100 \text{ mm} \sim 5000 \text{ mm}$ 、さらに好ましくは $200 \text{ mm} \sim 4000 \text{ mm}$ である。第1の繊維束間の交絡度が $100 \text{ mm}$ 未満では第2の繊維束を第1の繊維束に分割を行う際の分割能が劣ることとなり好ましくない。なお、第1の繊維束間の交絡度の上限は、特に限定されないが、第2の繊維束のハンドリング性の観点から $5000 \text{ mm}$ とするのが望ましい。また、第2の繊維束内の第1の繊維束の交絡度は、上記した第1の繊維束単独の交絡度と同じである。

【0036】第2の繊維束を構成する第1の繊維束の数は、2以上、好ましくは $2 \sim 20$ 、より好ましくは $2 \sim 10$ である。第1の繊維束の数の上限は、第2の繊維束から第1の繊維束への分割の容易さの観点から20とするのが望ましい。したがって、第2の繊維束のフィラメント総数は、 $200 \sim 20$ 万本、好ましくは $1000 \sim 10$ 万本、より好ましくは $2000 \sim 3$ 万本である。第2の繊維束のフィラメント総数が $200$ 本未満の場合には、生産性が低く、かつハンドリング性に劣り好ましくない。一方、第2の繊維束のフィラメント総数が $20$ 万本を超える場合には、不融化工程において第2の繊維束全体を均一に反応させるのが困難となり好ましくない。

【0037】このようにして得られた炭素繊維の前駆体の1種であるビッチ繊維束（すなわち、第1のビッチ繊維束が複数で構成される第2のビッチ繊維束）は、上記したように、 $100 \text{ mm}$ 以下の交絡度を有する第1のビッチ繊維束が2本以上の束で構成される第2の繊維束であり、該第2の繊維束内の該第1の繊維束間の交絡度が $100 \text{ mm} \sim 5000 \text{ mm}$ であることを特徴とするものである。

【0038】この引き取られた第2のビッチ繊維束は、一旦ボビンに巻き取ることも可能であるし、糸缶あるいはケンスに直接振り込んでも良い。あるいはコンベアーに振り込み、直接不融化等の後工程に供する事も可能である。

【0039】このようにして得られた第1のビッチ繊維束が複数で構成される第2のビッチ繊維束は、従来同

様、通常のビッチ繊維束と同じ扱いが可能であり、常法にしたがい不融化、炭化を行う。以下、簡単に不融化および炭化につき説明する。

【0040】まず、引き取られた第2のビッチ繊維束を（1）ボビンに巻き取られた状態、（2）ケンスに収納した状態、あるいは（3）コンベアーに繰り出し可能に振り込み、酸化性ガス雰囲気下で、温度 $100 \sim 400^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $100 \sim 350^{\circ}\text{C}$ 、不融化時間 $10 \sim 1000$ 分、好ましくは $30 \sim 500$ 分で不融化を行う。ここで、温度が $100^{\circ}\text{C}$ 未満の場合には不融化の反応が遅く、 $400^{\circ}\text{C}$ を超える場合には酸化が促進されすぎ好ましくない。不融化時間が $10$ 分未満の場合には不融化反応が不十分であり、 $1000$ 分を超える場合には生産性が低くなり好ましくない。

【0041】上記酸化性ガスとしては、例えば、二酸化窒素濃度が $0 \sim 10$ 体積%、好ましくは $0.5 \sim 5$ 体積%、酸素濃度が $1 \sim 50$ 体積%、好ましくは $5 \sim 30$ 体積%含むガスなどが利用できる。

【0042】次に、この不融化により得られた不融化繊維を、不活性ガス雰囲気下で、温度 $300 \sim 800^{\circ}\text{C}$ で、 $1 \sim 200$ 分、好ましくは $10 \sim 60$ 分処理し最初の炭化（一次炭化ないし低温炭化）を行う。これにより、最初の炭化後の第2の繊維束は第1の繊維束ごとに別れる事なく、1本の繊維束の状態を保持できる。そのため、通常に製造される繊維束と同様に扱うことができる。

【0043】つぎにこの低温炭化した第2の繊維束を、温度 $600 \sim 1500^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $600 \sim 1200^{\circ}\text{C}$ で、窒素ガス、アルゴンガス等の不活性ガス雰囲気の下に繰り出しながら、 $10$ 秒 $\sim 30$ 分間、好ましくは $20$ 秒 $\sim 5$ 分間焼成して炭化（2次炭化）を行なう。ここで、炭化（2次炭化）の温度が $600^{\circ}\text{C}$ より低い場合、炭化後の第2の炭化繊維束の強度が低く、次の黒鉛化工程での取扱が難しくなるなどの問題が生じる。一方、 $1500^{\circ}\text{C}$ を超える場合、炭化後の第2の炭化繊維束の弾性率が大きくなり、例えば、ボビンへ第2の炭化繊維束を巻取った場合に、毛羽立ち等の問題が生じる。また、炭化（2次炭化）の時間が $10$ 秒未満の場合には、炭化が不十分であり好ましくない。一方、 $30$ 分を超える場合には、生産性が著しく損なわれ好ましくない。

【0044】以上のような製造条件の設定で第2の炭化繊維束を得ることで、次工程の黒鉛化工程での生産性は極めて向上する。しかしながら、ビッチ系炭素繊維では、脆弱なビッチ繊維を出発原料に製造するために、どうしても、第2の炭化繊維束に欠陥、例えば、繊維同志の融着、あるいは剛直が生じたり、第2の炭化繊維束の一部が傷つき、部分的に破断している箇所を皆無にする事が極めて難しい。そこで、第2の炭化繊維束をケンス等の収納容器、あるいはボビンに巻取る前に第2の炭化繊維束を、目視あるいは光学的検出装置により第2の炭化繊維束にある一部欠陥箇所を検出し、ここで第2の炭



化繊維束を強制的に切断し、欠陥箇所を取り除くことが好ましい。これにより次工程である黒鉛化工程には、欠陥を全く含まない第2の炭化繊維束を供給することが可能となり、黒鉛化工程の生産性がさらに向上する。その結果、炭素繊維製品の生産性が著しく向上することが可能となるという利点を有する。

【0045】また、炭化を行った時点で繊維強度は向上しハンドリングも容易になるので、炭化後、この第2の炭化繊維束を第1の炭化繊維束に分割し小繊維の炭化繊維を得てもよい。そして、この第1の繊維束からなる炭化繊維を、黒鉛化することで低繊維度の炭素繊維を製造することもできる。このときの工程の概略の流れは図3のようになる。あるいは図4に示すように第2の繊維束を上述したように順次、不融化、炭化し、さらに黒鉛化して第2の炭素繊維束を得た後、これを第1の繊維束に分割することで低繊維度の炭素繊維を効率的に製造してもよい。すなわち、本発明の炭素繊維の製造方法では、黒鉛化工程は必ずしも必須の構成要件ではないが、黒鉛化工程を行うことが望ましい。

【0046】炭化後または黒鉛化後の第2の繊維束を第1の繊維束へ容易に分割しかつ第1の繊維束内の単繊維の交絡を除くためには炭化（2次炭化）の際に、第2の繊維束に対し、 $0.29\text{ mN/tex} \sim 9.8\text{ mN/tex}$ 、好ましくは $0.50 \sim 5.0\text{ mN/tex}$ の張力をかけながら、線状に焼成することが望ましい。炭化の際の張力が $0.29\text{ mN/tex}$ 未満では、分割の向上、交絡の低減の効果は不十分である。一方、炭化の際の張力が $9.8\text{ mN/tex}$ 超の張力では、張力が過剰となり炭化時の繊維破断等を引き起こし易くなるため不適である。また、上記温度条件で炭化（2次炭化）を行なう際に、上記に示す張力を加えながら焼成を行なうことにより、 $400^\circ\text{C}$ 以上の炭化温度で生じる繊維長さ方向の収縮を均一にすることが初めて可能となり、糸揃いの改善された第2の繊維束を得ることもできる。

【0047】第2の繊維束を分割し、複数の第1の繊維束を得るには、炭化あるいは黒鉛化を行った後、ピン、ガイド等を用いて第1の繊維束に分割しても良いし、あるいは複数の糸道ブーリー等を用いても良い。ピン、ガイド、あるいはブーリー等糸束の分割にはなるべく繊維との摩擦が少なく、毛羽等の発生が少ないものが好ましいが、材質、形状等は特に問うものではない。

【0048】つぎに、(a)炭化（2次炭化）した第2の炭化繊維束、(b)第2の炭化繊維束を第1の炭化繊維束に分割しながら、あるいは(c)炭化後に第2の繊維束を分割した第1の炭化繊維束に対して、炭化（2次炭化）温度よりも高い温度、好ましくは $1500 \sim 3000^\circ\text{C}$ の不活性ガス雰囲気の中に入れて繰り出しながら、1秒～30分間、好ましくは10秒～10分間焼成して黒鉛化を行なうこともできる。

【0049】黒鉛化の際に、上記(a)、(b)または

(c)のいずれかの繊維束に対し、 $0.29 \sim 100\text{ mN/tex}$ の張力をかけながら、黒鉛化することが望ましい。

【0050】上記炭化工程ないし黒鉛化工程で第1の繊維束に分割することなく得られた第2の繊維束（炭化繊維束ないし黒鉛化繊維束）は、第1の繊維束内の交絡度が $200\text{ mm}$ 以下、好ましくは $10\text{ mm} \sim 200\text{ mm}$ 、さらに好ましくは $20\text{ mm} \sim 200\text{ mm}$ である。交絡度が $200\text{ mm}$ を超すと第1の繊維束に分割を行う際の分割能が劣ることとなり好ましくない。また、第1の繊維束間の交絡度は $200\text{ mm}$ 以上、好ましくは $500\text{ mm}$ 以上、さらに好ましくは $1000\text{ mm}$ 以上である。この第1の繊維束間の交絡度が $200\text{ mm}$ 未満では第2の繊維束から第1の繊維束に分割を行う際の分割能が劣ることとなり好ましくない。この第2の炭素繊維束は、通常は比較的繊維の大きな繊維として扱えるものの、必要に応じて第1の繊維束に分割が可能であることから、織物あるいはブリブレッグの製造時に第1の繊維束に分割しながら使用することで、薄目付けの織物、ブリブレッグの製造に好適である。

【0051】本発明のビッチ系炭素繊維束は、 $200\text{ m}$ 以下の交絡度を有する第1の炭素繊維束が2本以上の束で構成される第2の繊維束であり、該第2の繊維束内の該第1の繊維束間の交絡度が $200\text{ mm}$ 以上であり、かつ第1の繊維束への分割能を有することを特徴とするものである。さらに本発明のビッチ系炭素繊維束は、上記第2の炭素繊維束を分割してなる第1の繊維束であることを特徴とするものであってもよい。本発明のビッチ系炭素繊維束では、毛羽もなく繊維のバラツキも無い低繊維度の炭素繊維とすることができ、軽量の炭素繊維織物、炭素繊維ブリブレッグの製造に適しており、スポーツ、レジャー産業、宇宙航空分野等種々の産業分野の使用に好適である。

【0052】なお、本発明のビッチ系炭素繊維束では、上記特性を有するほか、既存の炭素繊維同様に、高強度、高弾性率などの諸特性を有することはいうまでもない。具体的には、繊維束を構成するフィラメントの引張強度が $0.5\text{ GPa}$ 以上、好ましくは $1 \sim 7\text{ GPa}$ であり、引張弾性率が $30\text{ GPa}$ 以上、好ましくは $50 \sim 1000\text{ GPa}$ である。また、本発明のビッチ系炭素繊維束のフィラメント数は、上記使用目的に応じて適宜決定すればよく、第2の炭素繊維束の場合、通常 $200 \sim 20$ 万本、好ましくは $1000 \sim 10$ 万本、より好ましくは $2000 \sim 3$ 万本である。ビッチ系炭素繊維束を構成するフィラメントの平均繊維径も、上記使用目的に応じて適宜決定すればよく、通常 $4 \sim 25\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは $5 \sim 15\text{ }\mu\text{m}$ 、より好ましくは $6 \sim 12\text{ }\mu\text{m}$ である。

【0053】

【実施例】以下、さらに本発明を明確にするために、実施例ならびに比較例を用いて説明する。

【0054】なお、本発明の交絡度の評価（フックドロップ法）は以下の方法による。

【0055】繊維束に  $0.12 \text{ mN/tex} \sim 0.16 \text{ mN/tex}$  の張力を与え垂直に吊るす。先端を  $2 \text{ cm}$  程度直角に折り曲げた直径  $0.8 \text{ mm}$  の針金に、ピッチ繊維束の場合は  $1.2 \text{ g}$  の重りを、炭素繊維束の場合は  $0.2 \text{ g}$  の重りを繊維束に引っ掛け自由落下させた時の落下長を交絡度とする。なお、本発明では 1 条件につき 10 回の測定の前平均値を用いた。なお、サイジングを施した炭素繊維束の場合は、サイジングを空气中  $450^\circ\text{C}$  で 1 時間焼成しサイジングを除去した後測定に供した。

#### 【0056】実施例 1

原料としてキノリン不溶分を除去した軟化点  $80^\circ\text{C}$  のコールタールピッチを、触媒を用い直接水素化を行った。この水素化処理ピッチを常圧下  $480^\circ\text{C}$  で熱処理した後、低沸点分を除きメソフェーズピッチを得た。このピッチは、軟化点が  $300^\circ\text{C}$ 、メソフェーズ含有量が  $95\%$  質量%であった。このピッチをフィルターを用いて温度  $340^\circ\text{C}$  でろ過を行い、ピッチ中の異物を取り除き、精製ピッチを得た。この精製ピッチを紡糸原料とし、キャピラリー数  $1000$  の口金を 3 ヶ用いて紡糸を行なった。

【0057】紡糸粘度  $60 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 、紡糸速度が  $400 \text{ m/min}$  で各ノズルから引きとった繊維は各  $1000$  フィラメントの 3 本の束とし、各々の繊維束にシリコン系集束剤を付与した後、2 方向から  $4 \text{ m/s}$  の空気流を付与し交絡を与え、3 本の第 1 のピッチ繊維束とした。この第 1 の繊維束 3 本を合わせ、8 方向から  $50 \text{ m/s}$  の空気流を与え第 2 の繊維束とし、この繊維束をケンスに収納した。この第 2 の繊維束は平均繊維径が  $9.8 \mu\text{m}$ 、フィラメント数が  $3000$  であった。この第 2 のピッチ繊維束において第 1 の繊維束内の交絡度は  $45 \text{ mm}$  であり、第 2 の繊維束内の第 1 の繊維束間の交絡度は  $1500 \text{ mm}$  であった。

【0058】つぎに、この第 2 のピッチ繊維束をケンスに収納した状態で、二酸化窒素ガスを 5 体積% 添加した空気に酸化ガスをケンス下部から吹き込みながら  $150^\circ\text{C}$  から  $300^\circ\text{C}$  まで  $1^\circ\text{C/min}$  で昇温し、そのまま  $300^\circ\text{C}$  に 30 分保持して不融化繊維を得た。この不融化繊維をケンスに収納した状態で窒素ガス雰囲気下で不融化繊維を  $10^\circ\text{C/min}$  で昇温し、 $390^\circ\text{C}$  まで昇温しその温度で 30 分保持し低温炭化を行なった。この時の繊維束は 3 本に別れることなく、1 本の繊維束となっており、通常に製造される  $3000$  本からなる繊維束と同様であった。つぎにこの繊維束を温度  $1100^\circ\text{C}$ 、窒素ガス雰囲気下の炉にケンスから繊維糸条を繰り出しながら張力を  $1.18 \text{ mN/tex}$  かけながら、線状に焼成しポビンに巻とった。この工程を経てポビンに巻き取られた炭化繊維束は  $1000$  本の繊維束が 3 本に容易に分割される形態を呈した。この炭化繊維束において第 1 の繊維

束内の交絡度は  $55 \text{ mm}$  であり、第 2 の繊維束内の第 1 の繊維束間の交絡度は  $5000 \text{ mm}$  を超えた。この得られたポビンから炭化繊維糸束を巻き返しながらか  $1000$  フィラメントの繊維束を 3 本にガイドで分割しながら  $2500^\circ\text{C}$  の温度で黒鉛化を行い、1 本の炭化繊維ポビンから  $1000$  フィラメントの炭素繊維束を 3 本製造した。この炭素繊維束はフィラメント数  $1000$ 、平均繊維径  $7.0 \mu\text{m}$ 、引張強度  $4.2 \text{ GPa}$ 、引張弾性率  $620 \text{ GPa}$  で外観上も毛羽立ちのないものであった。

#### 【0059】実施例 2

実施例 1 で得られた炭化繊維束を分割する事なく温度  $2700^\circ\text{C}$  の温度で黒鉛化を行い、炭素繊維束を得た。この繊維束においてサイジングを取り除いた後の第 1 の繊維束内の交絡度は  $70 \text{ mm}$  であり、第 2 の繊維束内の第 1 の繊維束間の交絡度は  $5000 \text{ mm}$  を超えた。この炭素繊維束を複数のガイドブリーを用いフィラメント数  $1000$  の繊維束を 3 本に分割しそれぞれをポビンに巻きとった。この炭素繊維束は平均繊維径  $6.9 \mu\text{m}$ 、引張強度  $4.1 \text{ GPa}$ 、引張弾性率  $800 \text{ GPa}$ 、フィラメント数  $1000$  で毛羽立ちもなくまた、織度のバラツキもないものであった。

#### 【0060】比較例 1

実施例 1 の精製ピッチをキャピラリー数  $1000$  の口金を 3 ヶ用いて紡糸を行なった。紡糸粘度  $60 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 、紡糸速度が  $400 \text{ m/min}$  で各ノズルから引きとった繊維は各  $1000$  本の束とし、各々の繊維束にシリコン系集束剤を付与しただけで空気流による交絡は付与せず、この第 1 の繊維束 3 本を合わせ、8 方向から  $50 \text{ m/s}$  の空気流を与え第 2 の繊維束とし、この繊維束をケンスに収納した。このピッチ繊維束の交絡度を測定は第 1 の繊維束への分割が不可能であったため、第 2 の繊維束全体での交絡度を測定したところ  $40 \text{ mm}$  であった。

【0061】つぎにこのピッチ繊維束をケンスに収納した状態で、二酸化窒素ガスを 5 体積% 添加した空気に酸化ガスをケンス下部から吹き込みながら  $150^\circ\text{C}$  から  $300^\circ\text{C}$  まで  $1^\circ\text{C/min}$  で昇温し、そのまま  $300^\circ\text{C}$  に 30 分保持して不融化繊維を得た。この不融化繊維をケンスに収納した状態で窒素ガス雰囲気下で不融化繊維を  $10^\circ\text{C/min}$  で昇温し、 $390^\circ\text{C}$  まで昇温しその温度で 30 分保持し低温炭化を行なった。つぎにこの繊維束を温度  $1100^\circ\text{C}$ 、窒素ガス雰囲気下の炉にケンスから繊維糸条を繰り出しながら、該繊維束に対して  $1.18 \text{ mN/tex}$  の張力をかけながら線状に焼成しポビンに巻とった。この工程を経てポビンに巻き取られた繊維束は  $3000$  本の繊維束のままで  $1000$  本の繊維束への分割は生じなかった。

【0062】この得られたポビンから炭化繊維糸束を巻き返しながらか  $1000$  の繊維束 3 本にガイドで強制的に分割しながら  $2500^\circ\text{C}$  の温度で黒鉛化を試みたが、分割が連続的に実施できず、途中で繊維束

が切れ、安定的にフィラメント数1000の炭素繊維束を得る事が不可能であった。

#### 【0063】比較例2

実施例1の精製ピッチをキャピラリー数1000の口金を3ヶ用いて紡糸を行なった。紡糸粘度60 Pa・s、紡糸速度が400 m/minで各ノズルから引きとった繊維は各1000本の束とし、各々の繊維束にシリコーン系集束剤を付与した後、2方向から4 m/sの空気流を付与し交絡を与え、3本の第1の繊維束とした。この第1の繊維束3本を合わせ、実施例1と異なりそのまま第2の繊維束とし、このピッチ繊維束をケンスに収納した。このピッチ繊維束において第1の繊維束内の交絡度は50 mmであり、第2の繊維束内の第1の繊維束間の交絡度は5000 mmを超えた。つぎにこのピッチ繊維束をケンスに収納した状態で、二酸化窒素ガスを5体積%添加した空氣に酸化ガスをケンス下部から吹き込みながら150℃から300℃まで1℃/minで昇温し、そのまま300℃に30分保持して不融化繊維を得た。この不融化繊維をケンスに収納した状態で窒素ガス雰囲気下で不融化繊維を10℃/minで昇温し、390℃まで昇温しその温度で30分保持し低温炭化を行なった。つぎにこの繊維束を温度1100℃、窒素ガス雰囲気下の炉にケンスから繊維糸条を繰り出しながら焼成を試みたところ、1000フィラメントの繊維束が3本に別れてしまうことで、安定してケンスからの繰り出すことができず、また、炭化炉内での繊維束の分岐により連続的焼成が不能であった。

#### 【0064】実施例3

原料としてキノリン不溶分を除去した軟化点80℃のコールタールピッチを触媒下、温度360℃、圧力11.77 MPaで水素化処理し、原料中の硫黄分を40%除去した。得られた水素化コールタールピッチを温度400℃、圧力5.33 kPaで5hr減圧熱処理を行い軟化点160℃のピッチを得た。この熱処理ピッチを温度450℃、圧力66.66 Paでさらに5分熱処理して紡糸用ピッチを得た。このピッチは軟化点が250℃、トルエン不溶分が50質量%、キノリン不溶分が0質量%であり、メソフェースを全く含まない光学的等方性ピッチであった。

【0065】このピッチを用いて、内径0.1 mmのキャピラリーを1500ホール有する口金2つを用いて、紡糸粘度40 Pa・s、紡糸速度400 m/minで各ノズルから引きとった繊維は各1500フィラメントの2つの束とし、各々の繊維束に2方向から3.5 m/sの空気流を付与し交絡を与え、第1の繊維束を2本とした。この第1の繊維束2本を合わせ、8方向から50 m/sの空気流を与え第2の繊維束とし、この繊維束をケンスに収納した。この繊維束は平均繊維径9.5 μm、フィラメント数3000の連続ピッチ繊維束を得た。このピッチ繊維束において第1の繊維束内の交絡度は60

mmであり、第2の繊維束内の第1の繊維束間の交絡度は2000 mmであった。

【0066】このピッチ繊維束を二酸化窒素濃度4体積%、酸素濃度30体積%、120~240℃の温度で2時間で処理し、次いで二酸化窒素濃度0.4体積%、酸素濃度10体積%、240~330℃の温度で2時間計4時間で処理した。得られた不融化繊維束を窒素雰囲気、390℃、無緊張化で低温炭化を行った。この繊維束に対して0.98 mN/texの張力をかけながら1000℃で炭化を行い炭化繊維束を得た。この工程を経てポビンに巻き取られた繊維束は1500本の繊維束が2本に容易に分割される形態を呈した。この炭化繊維束において第1の繊維束内の交絡度は60 mmであり、第2の繊維束内の第1の繊維束間の交絡度は5000 mmを超えた。

【0067】この得られたポビンから炭化繊維束を巻き返ししながらフィラメント数3000の繊維束のまま2000℃の温度で黒鉛化を行った。その後、フィラメント数1500本の繊維束にガイドを用いながら分割し1500フィラメントの炭素繊維の繊維束2本を各々のポビンから安定的に製造する事ができた。この炭素繊維はフィラメント数1500、引張強度1.27 GPa、弾性率58.8 GPa、平均繊維径7.7 μmであり、毛羽もなく織度のバラツキも無いものであった。

#### 【0068】実施例4

実施例3で得た3000フィラメントの炭化繊維束を1500フィラメント繊維に分割する事なく2000℃の温度で黒鉛化を行ない3000フィラメントの炭素繊維を得た。なお、この炭素繊維は1500フィラメントの繊維束2本に容易に分割が可能であった。この繊維束においてサイジングを取り除いた後の第1の繊維束内の交絡度は70 mmであり、第2の繊維束内の第1の繊維束間の交絡度は5000 mmを超えた。この炭素繊維を用いてブリブレグを製造したところ、ブリブレグ装置手前で3000フィラメントの繊維束を1500フィラメントの繊維束2本に分割する事で、目付け30 g/m<sup>2</sup>のUDブリブレグが目開き無く美麗に製造することができた。

#### 【0069】

【発明の効果】以上のとおり、本発明は低織度の炭素繊維を製造する際に、炭素繊維製造コストを左右する、紡糸、不融化、炭化等の各工程では多織度炭素繊維と同様の生産性を維持し、最終的に低織度の炭素繊維の製造を可能とする事から、低織度の炭素繊維を工業的に生産性が良く安価に製造できるという極めて顕著な効果を示す。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の一実施態様に係るピッチ繊維の引き取り装置概略構成図である。

【図2】 本発明の一実施態様に係る空気流による織

17

維交絡装置の概略構成図(断面)である。

【図3】 本発明の一実施態様に係る炭素繊維製造工程概略構成図(炭化後分割)である。

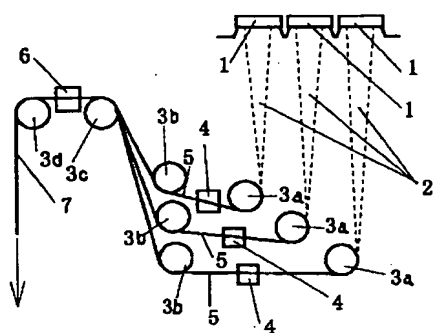
【図4】 本発明の一実施態様に係る炭素繊維製造工程概略構成図(黒鉛化後分割)である。

【符号の説明】

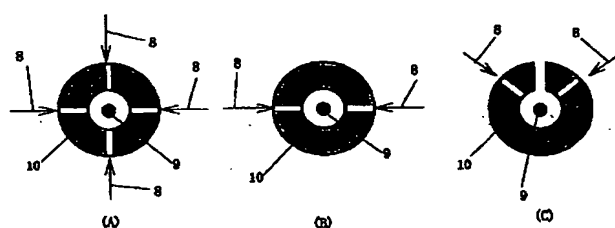
- 1…紡糸口金、  
2…ピッチ繊維フィラメント、  
3…ピッチ繊維引き取りロール、  
4…空気流による繊維交絡装置(第1の繊維束用)、  
5…第1の繊維束(ピッチ繊維束)、  
6…空気流による繊維交絡装置(第2の繊維束用)、  
7…第2の繊維束(ピッチ繊維束)、  
8…空気流、  
9…繊維束、  
10…空気流による繊維交絡装置本体、  
11…不融化工程、  
12…低温炭化工程、  
13…炭化工程、  
14…黒鉛化工程、  
15…炭素繊維(製品)。

\*

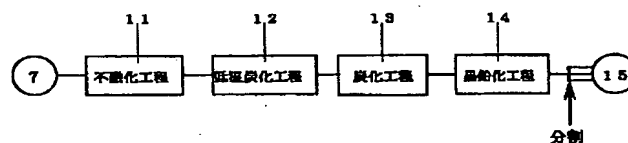
【図1】



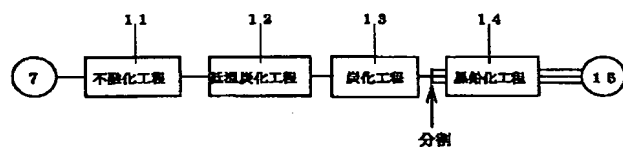
【図2】



【図4】



【図3】



フロントページの続き

(72)発明者 荒井 豊

東京都新宿区西新宿3-5-1 日本グラ  
ファイトファイバー株式会社内

(72)発明者 道券 克之

東京都新宿区西新宿3-5-1 日本グラ  
ファイトファイバー株式会社内

(72)発明者 中村 勉

東京都新宿区西新宿3-5-1 日本グラ  
ファイトファイバー株式会社内

Fターム(参考) 4L037 CS03 FA01 FA03 FA06 FA10

PC12 PF23 PF44 PG04 PP02

PP20 PP23 PP24 PP25 PP26

PP32 PP33 PP39 PS03 PS12

UA20

4L045 BA03 DA09 DA38 DA40